

平成22年4月1日現在

研究種目：若手研究（スタートアップ）
研究期間：2008～2009
課題番号：20840030
研究課題名（和文） コヒーレントラマン散乱を用いた高圧力マイクロ放電プラズマ研究
研究課題名（英文） Studies of high-pressure microdischarge plasma by electric-field-induced coherent Raman scattering
研究代表者
伊藤 剛仁 (ITO TSUYOHITO)
大阪大学・工学研究科・特任講師
研究者番号：70452472

研究成果の概要（和文）：

コヒーレントラマン散乱を用い、高圧力水素雰囲気におけるグロー状繰り返しナノ秒パルス放電に対する時間・空間分解電界計測に取り組み、ナノ秒パルス放電中でのドラスチックな電界形状変化、それに伴い空間電荷分布変化をとらえることに成功した。更に、近年応用が盛んに進められている大気解放雰囲気で発生させたマイクロプラズマ中での電界計測を実現するため、窒素分子をプローブ分子とした電界計測を実現し、大気開放雰囲気でレーザー電界計測を初めて可能とした。

研究成果の概要（英文）：

Electric field distributions in repetitive nanosecond-pulsed discharges, generated at 0.3 atm hydrogen environment are studied. Results revealed that the initiation of net charge accumulation near the cathode occurs very rapidly with the drastic change of the electric field distribution. Furthermore, the feasibility of electric field measurement based on E-CRS has been demonstrated for the first time in a nitrogen-containing gas at atmospheric or higher pressure, including open air.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	1,320,000	396,000	1,716,000
2009年度	1,200,000	360,000	1,560,000
年度			
年度			
年度			
総計	2,520,000	756,000	3,276,000

研究分野：プラズマ材料科学

科研費の分科・細目：プラズマ科学

キーワード：放電プラズマ、プラズマ診断、高圧力放電、コヒーレントラマン散乱

1. 研究開始当初の背景

大気圧雰囲気を始め、高圧力雰囲気におけるマイクロ放電プラズマは、従来の真空雰囲気におけるプラズマでは不可能であった新しいプラズマ応用をもたらしてきている。表面改質やナノ粒子合成、液体の浄化などの、応用研究が先行している一方、診断手法の不足から、その放電現象の理解に関する知見が不十分であるが現状である。それゆえに、経験的手法によるパラメータ変化によるプロセス改善が主体となり、現象の理解からなる劇的な改善や、新規応用の開拓は得られにくい状態である。

電界は、放電プラズマのダイナミクスを理解するために最も重要なパラメータのひとつである。電界によって加速された電子（もしくはイオン）は周囲の気体分子・原子と衝突し、ラジカルの生成や、フォトンの生成をもたらす。その反応効率は電子（もしくはイオン）のエネルギー分布に大きく依存し、そのエネルギー分布は電界強度・変化に大きく依存する。そのため、電界の空間・時間分布を得ることは、放電現象の理解のみならず、プラズマ中の反応制御に関する指針を与える。更に、電界分布は、ポアソン方程式から、プラズマ中の電荷（正味電荷）分布をもたらす。

本研究では、高圧力雰囲気においてもっとも有効な電界測定手法と思われる電界誘起コヒーレントラマン散乱 (E-CRS) に着手し、高圧力雰囲気におけるラジカル生成技術として注目を集めているナノ秒パルス放電現象の診断に取り組むとともに、もっとも応用研究が進められている大気解放雰囲気での測定を可能とするため、窒素分子を用いた測定を実現することを目的とした。なお、E-CRS法は、ロシアのグループによって約 10 年前に水素雰囲気に対してのみ報告されている手法であり、本研究は、水素分子を用いた 2 グループ目の成功例であるのみならず、窒素分子を用いた初の報告を目指したものである。

2. 研究の目的

本研究は、コヒーレントラマン散乱を用いた高圧力マイクロ放電プラズマの診断を行い、絶縁破壊機構や、発生された高圧力マイクロ放電プラズマ中のダイナミクスを明らかにし、近年盛んに研究が進められている各種マイクロプラズマ応用へのフィードバックをもたらすことを目的とする研究である。

3. 研究の方法

まず、電界計測用プローブ分子としての可能性が既実証されている水素分子をプローブ分子として用いた測定から取り組んだ。

対象としたのは、純水素雰囲気中で発生させたグロー状ナノ秒パルス放電である。図 1 に、電界誘起コヒーレントラマン散乱 (E-CRS) による水素プラズマ中の電界計測装置の概略図を示す。二つのナノ秒パルスレーザー (532nm, 683nm) と電界の作用により、水素分子からコヒーレントな赤外光 ($2.4 \mu\text{m}$) が放出される。その強度が電界強度に依存することから、電界強度を見積もることが可能である。あわせて、高速カメラによる発光分布の時間分解計測も行った。

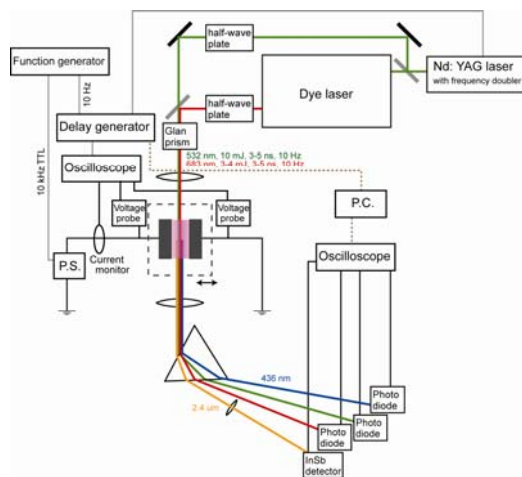


図 1. 水素ナノ秒パルス放電プラズマ中の電界誘起コヒーレントラマン散乱電界計測概略図。

更に、近年応用が盛んに進められている大気解放雰囲気中で発生させたマイクロプラズマ中での電界計測を可能とするため、窒素分子をプローブ分子とした電界計測にも取り組んだ。光分離に用いたプリズムを除き、光学システムは水素を対象とした構成 (図 1) とほぼ同様である。その際のレーザー波長は、532nm および 607nm であり、測定される赤外光の波長は、 $4.29 \mu\text{m}$ である。

4. 研究成果

図 2 に、純水素雰囲気中で発生させたグロー状ナノ秒パルス放電に対する電極間中央付近での電界測定結果並びに電極間の平均電圧、高速カメラによる発光強度分布を示す。強い発光を伴う時間の前まで (図 2 内 時間 $< \sim 18\text{ns}$) は、図 2 において平均電界と電極間中央測定電界が一致し、また、空間全体においても一致した (図省略) ことから、空間電荷の影響は測定できないほど小さいことを示すとともに、1-2ns といった短時間の間に、陽極側から陰極側へとスタートする強い発光とともに、平均電界と測定電界がずれ始め、その短時間に、正味正の電荷が陰極近傍に偏在することを示唆する結果を得た (電荷

の偏りを示す図面はここには載せていない)。イオンが動くことのできない短時間の間に、主に電子のダイナミクスによって、定常状態における直流放電中で見られるような陰極シースを伴う電界強度分布が形成されるといった興味深いダイナミクスである。

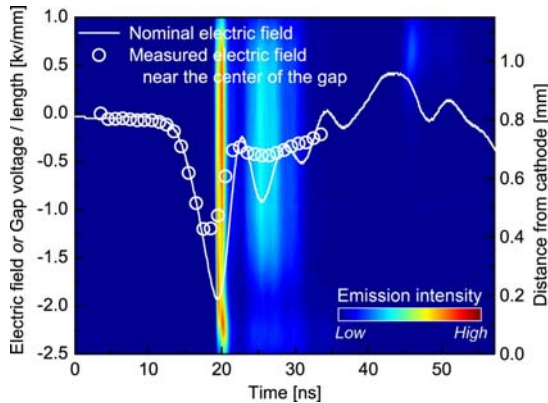


図 2. 水素ナノ秒パルス放電プラズマ中、電極間中央付近における電界強度 (○)、電極間平均電界 (—)、並びに発光強度分布 (カラーマップ)。

図 3 に、放電プラズマの発生のない大気開放雰囲気にておいて、既知の電界の元測定した結果を示している。電界誘起コヒーレントラマン散乱強度 (S_{IR}) と、通常のコヒーレントアンチストークスラマン散乱強度 (S_{CARS}) の比のルートを縦軸に示しているが、この値と電界との間に比例関係が成り立っていることは、本手法を用いた大気開放雰囲気におけるレーザー電界計測の成功を意味している。本手法は、大気開放雰囲気におけるレーザー電界計測の第一報となった。

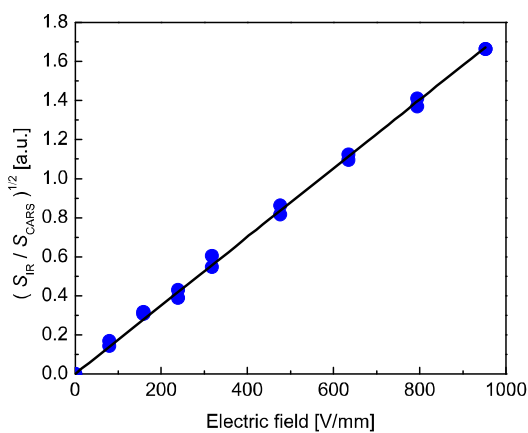


図 3. 既知の電界を持つ大気開放雰囲気において窒素分子を用いた測定結果。 S_{IR} 及び S_{CARS} は、それぞれ電界誘起コヒーレントラマン散乱強度、コヒーレントアンチストークスラマン散乱強度。

なお、この際の S_{IR} 強度は、窒素分子密度の関数である。そのため、密度変化に対して、 S_{IR} と同様の变化を示す S_{CARS} との比を取ること、分子密度の情報を得ることなく、電界の見積が可能となる。実際に、分子密度を変化させた系での実験も行い、確かに分子密度の変動に依存しない電界計測の実現を確認した。プラズマのように分子密度変動を伴うような系においては、分子密度の情報を得る必要なく電界が計測できる本手法は非常に有効であろう。

以上のように、コヒーレントラマン散乱を用い、水素ナノ秒パルス放電プラズマにおいて興味深い放電ダイナミクスを明らかにするとともに、窒素分子を用いた測定を実現し、本手法のマイクロ放電プラズマ測定に対する高い可能性を示した。今後、本手法を用いたマイクロ放電プラズマ現象のさらなる理解、深い理解から来る応用における劇的な改善に結びつけていきたい。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 4 件)

1. T. Ito, K. Kobayashi, U. Czarnetzki, S. Hamaguchi, “Rapid formation of electric field profiles in repetitively pulsed high-voltage high-pressure nanosecond discharges,” *J. Phys. D: Appl. Phys.* 43, 062001-1-5 (2010). [査読有]

2. T. Ito, K. Kobayashi, U. Czarnetzki, S. Hamaguchi, “Electric field measurement in repetitively pulsed nanosecond discharges in a high pressure hydrogen environment,” *Proc. 19th Int. Symp. Plasma Chem. (ISPC-19)*, Bochum, Germany, 04.02 (4 pages) (2009). [査読無]

3. S. Müller, T. Ito, K. Kobayashi, D. Luggenhölscher, U. Czarnetzki, S. Hamaguchi, “Electric field measurements in near-atmospheric pressure nitrogen and air based on a four-wave mixing scheme,” *Proc. 19th Int. Symp. Plasma Chem. (ISPC-19)*, Bochum, Germany, P2.4.06 (1 page) (2009). [査読無]

4. T. Ito, K. Kobayashi, S. Müller, D. Luggenhölscher, U. Czarnetzki, S. Hamaguchi, “Electric field measurement in an atmospheric or higher pressure gas by coherent Raman scattering of nitrogen,” *J. Phys. D: Appl. Phys.* 42, 092003-1-3 (2009). [査読有]

[学会発表] (計 15 件)

1. T. Ito “Advanced Diagnostics of

Laboratory-Scale Plasma Discharges,” International Symposium at Frontier Research Base for Global Young Researchers, Osaka, Japan, Nov. 24-25, 2009.

2. S. Mueller, T. Ito, K. Kobayashi, D. Luggenhoelscher, U. Czarnetzki, S. Hamaguchi, “Electric field measurements in near-atmospheric pressure nitrogen and air based on a four-wave mixing scheme,” 62nd Gaseous Electronics Conference, Saratoga Springs, NY, USA, Oct. 20-23, 2009.

3. T. Ito, K. Kobayashi, U. Czarnetzki, S. Hamaguchi, “Laser electric field measurements by coherent Raman scattering by molecules at atmospheric pressure,” 14th International Symposium on Laser-Aided Plasma Diagnostics, Treviso, Italy, Sep. 21-24, 2009. [invited]

4. S. Müller, T. Ito, K. Kobayashi, D. Luggenhölscher, U. Czarnetzki, and S. Hamaguchi, “Electric field measurements in near-atmospheric Pressure nitrogen and air based on a four-wave mixing scheme,” 14th International Symposium on Laser-Aided Plasma Diagnostics, Treviso, Italy, Sep. 21-24, 2009.

5. T. Ito, K. Kobayashi, U. Czarnetzki, S. Hamaguchi, “Electric field measurement in repetitively pulsed nanosecond discharges in a high pressure hydrogen environment,” 19th Int. Symp. Plasma Chem. (ISPC-19), Bochum, Germany, July. 26-31, 2009.

6. S. Müller, T. Ito, K. Kobayashi, D. Luggenhölscher, U. Czarnetzki, and S. Hamaguchi, “Electric Field Measurement in Near-atmospheric Pressure Nitrogen and Air Based on a Four-wave Mixing Scheme,” 19th Int. Symp. Plasma Chem. (ISPC-19), Bochum, Germany, July. 26-31, 2009.

7. T. Ito, K. Kobayashi, U. Czarnetzki, and S. Hamaguchi, “Electric field measurement in repetitively pulsed nanosecond discharges,” 22nd Symposium on Plasma Science for Materials, Tokyo, Japan, June 15-16, 2009.

8. S. Müller, T. Ito, K. Kobayashi, D. Luggenhölscher, U. Czarnetzki, and S. Hamaguchi, “Electric field measurements

in near-atmospheric Pressure nitrogen and air based on a four-wave mixing scheme,” Deutschen Physikalischen Gesellschaft (DPG), Greifswald Germany, March 30 - April 2, 2009.

9. 伊藤剛仁, 小林和伸, S. Mueller, D. Luggenhölscher, U. Czarnetzki, 浜口智志, “コヒーレントラマン散乱による高圧力水素・窒素・大気雰囲気での電界測定,” 2009年春季第56回応用物理学関係連合講演会, 筑波大学, 2009年3月31日-4月2日. [講演奨励賞受賞記念講演]

10. T. Ito, K. Kobayashi, U. Czarnetzki, and S. Hamaguchi, “Electric field measurement in high-pressure hydrogen microdischarges,” Fundamentals and Applications of Microplasmas, San Diego, CA, USA, March 1-6, 2009. [invited]

11. S. Mueller, T. Ito, K. Kobayashi, D. Luggenhölscher, U. Czarnetzki, and S. Hamaguchi, “Electric Field Measurement in Near-atmospheric Pressure Nitrogen and Air Based on a Four-wave Mixing Scheme,” Fundamentals and Applications of Microplasmas, San Diego, CA, USA, March. 1-6, 2009.

12. T. Ito “Advanced Diagnostics and Modeling of Laboratory-Scale Plasma Discharges,” International Symposium at Frontier Research Base for Global Young Researchers, Osaka, Japan, Dec. 15-16, 2008.

13. T. Ito, K. Kobayashi, U. Czarnetzki, S. Hamaguchi “Repetitive nanosecond-pulsed discharge in high-pressure hydrogen environments,” 61st Gaseous Electronics Conference, Dallas, TX, USA, Oct. 14-17, 2008.

14. K. Kobayashi, T. Ito, U. Czarnetzki, S. Hamaguchi “Electric field measurements in high-pressure hydrogen environments with a few nanosecond time resolutions,” 61st Gaseous Electronics Conference, Dallas, TX, USA, Oct. 14-17, 2008.

15. 伊藤剛仁, 小林和伸, Uwe Czarnetzki, 浜口智志, “コヒーレントラマン散乱による高圧力水素放電雰囲気での電界測定” 2008年秋季第69回応用物理学会学術講演会, 中部大学, 2008年9月2-5日

[その他]

ホームページ:

[http://www.wakate.frc.eng.osaka-u.ac.jp
/tsuyohito/ItoGroup/](http://www.wakate.frc.eng.osaka-u.ac.jp/tsuyohito/ItoGroup/)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

伊藤 剛仁 (ITO TSUYOHITO)

大阪大学・工学研究科・特任講師

研究者番号: 70452472